

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
28. Oktober 2004 (28.10.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/091771 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **B01J 19/00**

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2004/003377

(22) Internationales Anmeldedatum:
31. März 2004 (31.03.2004)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
103 17 451.6 16. April 2003 (16.04.2003) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
US): **UHDE GMBH** [DE/DE]; Friedrich-Uhde-Strasse 15,
44141 Dortmund (DE). **DEGUSSA AG** [DE/DE]; Ben-
nigsenplatz 1, 40474 Düsseldorf (DE).

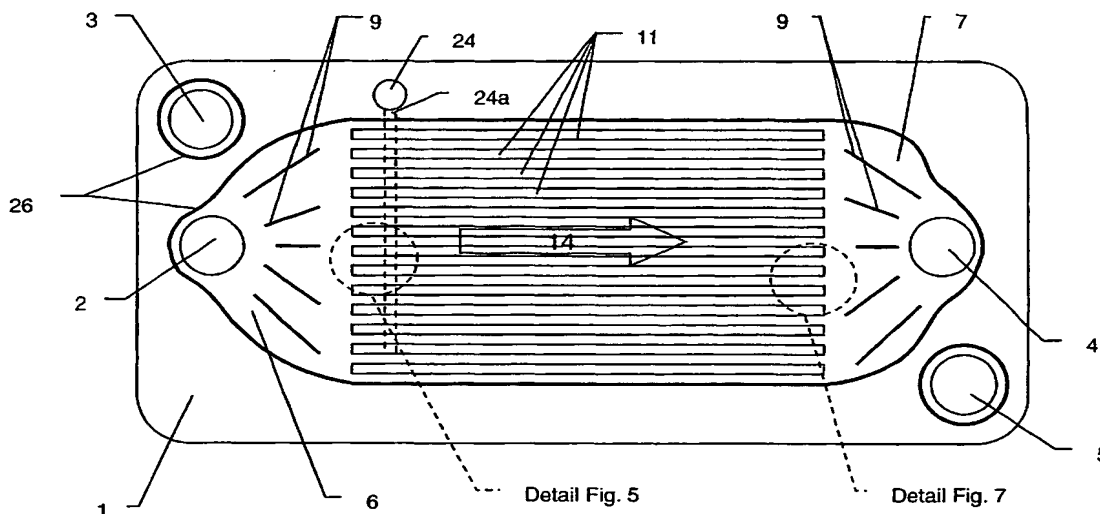
(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **MARKOWZ, Georg**
[DE/DE]; Alte Strasse 11, 63791 Karlstein (DE). **AL-
BRECHT, Johannes** [DE/DE]; Kudlich Siedlung 1,
61206 Wöllstadt (DE). **EHRlich, Johannes** [DE/DE];
Rannenbergring 16, 63755 Alzenau (DE). **JUCYS,
Michael** [DE/DE]; Wittmannstrasse 8, 64285 Darm-
stadt (DE). **KLEMM, Elias** [DE/DE]; Kaulbachplatz 5,
90408 Nürnberg (DE). **LANGE DE OLIVEIRA, Armin**
[DE/DE]; Heumarkt 2, 63450 Hanau (DE). **MACHNIK,
Reinhard** [DE/DE]; Platanenring 31, 63517 Rodenbach
(DE). **RAPP, Jürgen** [DE/DE]; Albert-Wamser-Strasse 8,
35510 Butzbach (DE). **SCHÜTTE, Rüdiger** [DE/DE]; Im
Goldenen Ring 11, 63755 Alzenau (DE). **SCHIRRMES-
TER, Steffen** [DE/DE]; Kolumbusstrasse 39, 45472
Mülheim an der Ruhr (DE). **VON MORSTEIN, Olaf**

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: MICROREACTOR COMPOSED OF PLATES AND COMPRISING A CATALYST

(54) Bezeichnung: MIKROREAKTOR IN PLATTENBAUWEISE MIT EINEM KATALYSATOR



BEST AVAILABLE COPY

(57) Abstract: The invention relates to a microreactor (1) composed of plates or stacks for carrying out heterogenically catalysed reactions for commercial use, said reactor being provided with chambers between the plates for the chemical reaction and the dissipation of heat. Catalytic material is applied to the internal walls or lies in recesses of the reaction chambers and spacer elements (11) are provided in all chambers. The invention is characterised in that the slot-type reaction chambers of the microreactor comprise channels with a hydraulic diameter of less than 1500 micrometers and a ratio of free slot width to free slot height ranging between 10 and 450.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung offenbart einen Mikroreaktor (1) zur Durchführung heterogenkatalysierter Reaktionen in Platten- bzw. Stapelbauweise für den grosstechnischen Einsatz, wobei Plattenzwischenräume für die chemische Reaktion und für den Wärmeabtransport vorgesehen sind. In den Reaktionsräumen ist Katalysatormaterial

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 2004/091771 A1



[DE/DE]; Hufelandstrasse 8, 45147 Essen (DE). **HED-ERER, Hartmut** [DE/DE]; Solbergweg 71, 44225 Dortmund (DE). **SCHMITZ-NIEDERAU, Martin** [DE/DE]; Helmholtzweg 41, 48159 Münster (DE).

(74) **Gemeinsamer Vertreter:** **UHDE GMBH**; Friedrich-Uhde-Strasse 15, 44141 Dortmund (DE).

(81) **Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) **Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

an den Innenwänden aufgebracht oder in Vertiefungen eingefüllt und in allen Räumen sind Distanzelemente (11) angeordnet. Insbesondere weisen die schlitzförmigen Reaktionsräume des Mikroreaktors Kanäle mit einem hydraulischen Durchmesser von unter 1500 Mikrometer und einem Verhältnis von freier Schlitzbreite zur freien Schlitzhöhe im Bereich von 10 bis 450 auf.

MIKROREAKTOR IN PLATTENBAUWEISE MIT EINEM KATALYSATOR

5 [0001] Die Erfindung betrifft einen Mikroreaktor mit katalytischer Wandpräparation zur Durchführung heterogen katalysierter Gasphasenreaktionen im industriellen Maßstab. Der Reaktor ist analog einem Plattenwärmetauscher in Schichten aufgebaut, wobei die so entstehenden und durch Distanzelemente stabilisierten und segmentierten Räume Reaktionsräume und Wärmetransporträume darstellen. Der Schichtenaufbau ist derart dimensioniert, dass für den großtechnischen Einsatz für eine Produktion im Tonnenmaßstab optimale Verhältnisse bezüglich Strömung, Wärme- und Stofftransport, Reaktionskinetik, Verfahrenssicherheit und Statik vorliegen.

10 [0002] Mikroreaktoren in Plattenbauweise sind in der industriellen Anwendung weit verbreitet und in unterschiedlichstem Einsatz. Der Aufbau dieser gestapelten Reaktoren ist im Wesentlichen ähnlich und umfasst eine oder mehrere zentrale Zuleitungen für Edukte bzw. Wärmetransportmedien, von welchen Teilströme abzweigen und in die jeweiligen Schicht zugeführt werden. Nach der Durchströmung einer Schicht und dem
15 jeweiligen chemischen oder physikalischen Prozessschritt, werden die Einzelströme stoffweise in zentralen Ableitungen zusammengefasst und nachfolgenden Schichten zugeführt oder aus dem Reaktor geleitet.

[0003] In US2002/0106311 und US5,534,328 sind Mikroplattenreaktoren der vorgenannten Art offenbart, in welchen eine Vielzahl von Schichten und Schichtabfolgen
20 beschrieben werden, welche zum Teil unterschiedliche Funktionen erfüllen, wobei allerdings in Bezug auf eine optimierte Konstruktion oder Verfahrensführung für den großtechnischen Einsatz keine Lehre offenbart wird. Dies ist insbesondere in Bezug auf extremere Prozessbedingungen wie hohe Drücke, hohe Temperaturen und/oder stark exothermer Reaktionen oder explosiver Gaszusammensetzungen ein diesen
25 Schriften innewohnender Mangel.

[0004] In DE 39 26 466 ist ein Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Zweistoffreaktionen beschrieben, dessen Einsatz für Reaktionen mit starker Wärmetönung benannt wird und welcher auch für heterogen katalytische Reaktionen geeignet ist. In den Schichten sind Längsrillen angeordnet, die von dem Reaktionspartner nach einer Zusammenführung von im Wesentlichen zwei Medien durchströmt werden, während
30 wechselweise in einer nachfolgenden Schicht ein Kühlmedium strömt. Diese quer zu den Reaktionsrillen verlaufende Kühlung erfolgt gemäß DE 39 26 466 am Ende der Längsrillen über die Schichtwand oder auf der kompletten Schichtlänge. Zur Einstel-

lung der Wärmetransportvorgänge und erforderlicher Kompaktheit werden Wandstärken kleiner 1000 μm angegeben, was den Einsatz dieses Reaktors für aggressive Reaktionen unter hohen Drücken verbietet. In der industriellen Anwendung sind weiterhin häufig Katalysatormaterialien im Einsatz, die nicht aus der Gruppe der genannten katalytisch wirkenden Metalle stammen und nicht als Basismaterial einsetzbar sind.

- 5
- 10
- 15
- 20
- 25
- 30
- 35
- [0005]** In DE 196 54 361 wird ein Reaktor in Stapelbauweise beschrieben, welcher für chemisch-katalytische Prozesse eingesetzt wird, wobei der Katalysator als Schicht an den Innenwänden der Reaktionskanäle aufgebracht ist. Alternierend zu den die Reaktionskanäle enthaltenden Schichten sind Schichten angeordnet, in welchen analog den vorgenannten Schriften ein Wärmetransportmittel geführt wird, wobei gleichartige Schichten in fluidischer Verbindung stehen. In DE 196 54 361 wird eine sehr einfache Variante der Strömungsführung innerhalb des Reaktors offenbart, indem über einen quer liegenden Schlitz das von der vorherigen Schicht ankommende Reaktionsfluid auf die nachfolgende Reaktionsschicht bzw. den Ableitungskanal verteilt wird. Nachteilig ist, dass durch diese fast direkte Weiterleitung nur sehr geringe Homogenisierungsvorgänge zwischen den Teilströmen der einzelnen Kanäle ablaufen, so dass aufgrund unterschiedlicher Strömungswiderstände, welche zum Beispiel aus Fertigungstoleranzen der Wand- oder Katalysatoroberflächen sowie Ablagerungen von Depositen auf den inneren Oberflächen im Laufe der Reaktion, die Gefahr unterschiedlich stark durchströmter Kanäle gegeben ist. Hieraus folgt eine Verschlechterung der Reaktion, so dass hieraus eine verstärkte Bildung von Neben- und Folgeprodukten beziehungsweise ein erhöhter Anteil nicht reagierten Edukts am Ausgang folgt. Angaben zur reaktionsspezifischen Dimensionierung der einzelnen Schichten oder Kanaldimensionen sind der Schrift nicht zu entnehmen.
- [0006]** EP 1 031 375 offenbart einen Mikroreaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen in horizontalen Räumen, welcher analog dem vorgenannten Reaktor funktioniert, wobei die Fluidweiterleitung zur nächsten Schicht oder Funktionsstufe über einen rotationssymmetrischen Kanal erfolgt. Entscheidend an dem in EP 1 031 375 offenbarten Mikroreaktor ist, dass die Dichtung zwischen den Platten ohne zusätzliche Dichtungsmaterialien mittels integrierter Abdichtzonen erfolgt, welche nur über die beidseitig hochwertige Oberflächenbeschaffenheit in diesem Bereich und entsprechenden Anpressdruck realisiert wird. Als Merkmal wird weiterhin genannt, dass je nach Bedarf diverse Prozesse und Synthesen zusammengestellt werden können, da die Funktionsmodule dieses Mikroreaktors leicht lösbar miteinander verbunden sind. In der industriellen Anwendung sind sehr hohe Anforderungen an die Oberflächenbeschaf-

fenheit in Berührungs- und Revisionsbereichen sicherlich kritisch zu sehen, und für Reaktionen mit einer sehr ausgeprägten Wärmetönung oder Druckwechseln ist keine ausreichende Leckagesicherheit gegeben.

5 **[0007]** In EP 0 903 174 wird ein Mikroreaktor für Flüssigphasenreaktionen organischer Verbindungen unter Einsatz von Peroxiden als Oxidationsmittel offenbart, welcher das Problem der sicheren Temperaturführung über eine alternierende und stapelweise Abfolge von Reaktions- und Kühlschichten löst, wobei die Mikrokanäle der benachbarten Schicht immer im rechten Winkel zueinander verlaufen und eine maximale Restwanddicke zwischen Reaktionskanal und angrenzender Kühlschicht von 1000 μm und
10 ein maximaler hydraulischer Durchmesser der Reaktionskanäle von ebenfalls 1000 μm aufgezeigt wird. Die zentrale Herausforderung der in dieser Schrift genannten peroxidischen Reaktionen ist der Explosionsschutz. Damit sind Dichtheit des Systems sowie die Sicherstellung einer optimalen Durchmischung der eingesetzten Reaktanten fundamental, um Bereiche mit explosiven Peroxid-Konzentrationen zu vermeiden, allerdings ist hierzu EP 0 903 174 außer der Dimensionierung der Kanalquerschnitte keine
15 Lehre zu entnehmen. Der Explosionsschutz wird in der genannten Schrift nur unter dem Gesichtspunkt der sicheren Einhaltung der erforderlichen Temperatur und Konzentrationen betrachtet.

[0008] Aus DE 100 42 746 ist eine Vorrichtung und ein Verfahren bekannt, in welchem
20 mindestens zwei fluide Medien miteinander reagieren, wobei gegebenenfalls weiterhin ein rieselfähiger oder wandanhaftender Katalysator vorliegt. Die Reaktion findet in dem beschriebenen Reaktor in flächig-spaltförmigen Reaktionsräumen statt. In den diese Reaktionsräume bildenden Platten sind Hohlräume oder Bohrungen vorgesehen, in welchen das Wärmetransportmedium hindurchgeführt wird. Grundidee dieses in
25 DE 100 42 746 offenbarten Reaktors ist ein parallel und flächig durchströmter Reaktionsraum ohne weitere Einbauten, wobei einzelne Abstandhalter im Randbereich die Spaltweite zwischen zwei Platten sicherstellt. Dabei werden nur in einer Abmessung, nämlich in der Spaltweite, Mikrodimensionen im Bereich von 50 bis 5000 μm eingestellt. Ein weiteres zentrales Merkmal ist die inhärente Sicherheit dieses Reaktors, da
30 der geringe freie Durchmesser eine Flammenausbreitung unterbindet. Dieser Reaktor ist von der Grundidee sehr vielversprechend, allerdings sind im industriellen Einsatz bei den genannten großen flächigen Spalten Teilverschlüsse der Reaktionsschlitzten zu erwarten. Derartige Teilverschlüsse sind Folge von hohen Druckdifferenzen zwischen Reaktionsraum und Wärmetransportraum oder thermisch bedingter Spannungen, beispielsweise bei prozessbedingten An- oder Abfahrvorgängen.
35

[0009] Bei einer Wandbeschichtung mit einem katalytisch wirkenden Material ist weiterhin zu erwarten, dass vorgenannte Materialbewegungen sowie prozessbedingte Schwingungen und Vibrationen zu Abplatzungen führen, welche wiederum einen Teilverschluss zur Folge haben. Fertigungstechnisch sehr aufwändig sind die vielen Hohlräume in den Platten, welche weiterhin nur sehr schwer kontrolliert und gereinigt werden können. Die für viele Reaktionen erforderliche Möglichkeit zur gleich- oder gegengerichteten Durchströmung von Reaktionsschlitzten und Wärmetransporträumen besteht nicht.

[0010] Gegenüber dem eingangs beschriebenen Stand der Technik liegt der Erfindung das technische Problem zugrunde, einen Mikroreaktor für den großtechnischen industriellen Einsatz anzugeben, mit welchem heterogen katalytische Reaktionen bei hohen Temperaturen und Drücken sowie bei explosiven Prozesszuständen durchführbar sind, mit welchem Stoffmengen produzierbar sind, die im Bereich von Tonnen pro Tag liegen und eine Kapazitätserhöhung mittels einer einfachen Vervielfältigung der Reaktions- und Wärmetransporträume möglich ist.

[0011] Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß aufgrund der Merkmale des Anspruchs 1 gelöst und durch die Merkmale der Unteransprüche ausgestaltet. Offenbart wird ein Mikroreaktor zur Durchführung heterogenkatalysierter Reaktionen, welcher eine Vielzahl von vertikal oder horizontal und im Wesentlichen parallel angeordneten Räumen aufweist. Diese Räume weisen mindestens je eine Zuleitung auf, welche mit mindestens einer Verteilereinheit verbunden ist und umfassen weiterhin Ableitungen, welche mit mindestens einer Sammeleinheit verbunden sind. Die Zuleitungen der Räume und Fluide gleichen Typs sind miteinander verbunden, wobei selbiges auch für die Ableitungen der Räume gleichen Typs gilt. Die Räume werden durch gestapelte Platten oder Schichten gebildet, wobei ein Teil der Räume Reaktionsräume darstellt, in welchen die chemisch-katalytische Reaktion abläuft, und der andere Teil der Räume stellt Wärmetransporträume zur Durchleitung eines Kühl- oder Heizmediums dar, wobei der Wärmetransport zwischen Reaktions- und Wärmetransporträumen durch mindestens eine gemeinsame Raumwand oder direkt anliegende benachbarte Platten erfolgt. In allen Räumen sind Distanzelemente angeordnet, um die Kraftdurchleitung eines von außen anliegenden Anpressdruckes durch den Plattenstapel zu leiten und den Verschluss der Mikrokanäle durch Verformung der freien Tragweite zu unterbinden. Diese Verformung ist Folge eines Differenzdruckes zwischen Reaktions- und Wärmetransportraum. Erfindungsgemäß ist auf den Innenwänden der Reaktorräume mindestens teilweise Katalysatormaterial aufgebracht. Hierbei wurde überraschenderweise ent-

deckt, dass der freie Strömungsquerschnitt in den Mikrostrukturen dieser Konstruktion nach dem Aufbringen des Katalysators einen hydraulischen Durchmesser kleiner $4000\ \mu\text{m}$ und ein Verhältnis von Schlitzbreite zu Schlitzhöhe von kleiner 800 aufweisen muss.

- 5 **[0012]** Abhängig vom gewählten Grundmaterial der Platten wird weiterhin von der Erfindung offenbart, dass eine besonders vorteilhafte Reaktorkonstruktion vorliegt, wenn der hydraulische Durchmesser des freien Strömungsquerschnitts unter $1500\ \mu\text{m}$ und idealerweise unter $500\ \mu\text{m}$ liegt, wobei ein Verhältnis zwischen der Abstandslänge benachbarter Distanzelemente zur Schlitzhöhe des Reaktionsraumes kleiner 800, vorrangig kleiner 450 und idealerweise unter 100 vorliegt. Dieses Längenverhältnis darf allerdings nicht kleiner als 10 sein. Der Abstand zweier Distanzelemente meint hierbei die lotrecht kleinste Distanz und ist damit im Falle paralleler Schlitze die Schlitzbreite. Unter Schlitzhöhe und Abstand der Distanzelemente sind die Größen nach einer Beschichtung zu verstehen, da nur diese den freien Strömungsquerschnitt bilden. Bei
- 10
- 15 einer derartigen Plattenkonstruktion zeigte sich überraschender Weise, dass unerwünschte strömungsmechanische und chemische Randeefekte im Reaktionsraum vernachlässigbar sind.

- [0013]** Bei einer effektiven Plattenhöhe von kleiner $4000\ \mu\text{m}$ und einem metallischen Basismaterial der Platte, ist bezüglich des Wärmetransportes die Dicke der Katalysatorschicht die limitierende Größe für den Wärmetransport, welche eine Stärke bis ungefähr 2 mm aufweisen kann, womit ein quasi isothermer Betrieb des Mikroreaktors möglich ist.
- 20

- [0014]** Die Katalysatorbeschichtung der Innenräume kann auch auf den Sammel- oder Verteilerraum ausgedehnt sein, wobei auch ein zu dem in den Reaktionsschlitzen unterschiedlicher Katalysator in diesen Bereichen an den Wandflächen angebracht sein kann.
- 25

- [0015]** Die Formgebung der Distanzelemente ist in keiner Weise eingeschränkt und kann rotationssymmetrisch, tropfenförmig, rhombenförmig oder vorteilhafterweise als Stege und idealerweise als durchgehende Stege gestaltet sein. Entscheidend ist ein ausreichendes Tragverhältnis, welches sich als Funktion aus den Materialeigenschaften des Basismaterials, der Prozesstemperatur und dem Differenzdruck zwischen benachbarten Räumen und dem resultierenden und von außen aufzubringenden Anpressdruck ergibt.
- 30

[0016] Der wesentliche Vorteil einer Gestaltung der Distanzelemente als durchgehende Stege ist der Einfluss auf das Strömungsverhalten in den auf diese Weise ausgebildeten rechteckigen Reaktionsschlitzten, die zusätzlich erzeugte Haftfläche für das Katalysatormaterial und fertigungstechnische Gesichtspunkte.

- 5 **[0017]** Das Strömungsverhalten, Diffusionseffekte und Stofftransportvorgänge können in definierten Schlitzten sehr gut simuliert und optimiert werden. Gleichzeitig kann der Einfluss von Querströmungen und Rückvermischungen unterbunden werden. Die Seitenflächen der Stege dienen dem an den Wänden anhaftenden Katalysator als Kontakt- und Haftfläche und stabilisieren so das Katalysatorbett. Aus fertigungstechnischer
- 10 Sicht sind Platten mit gleichmäßigen Schlitzten oder Stegen auf Standardmaschinen technisch einfach und sehr wirtschaftlich herstellbar. Zur Bereitstellung einer ausreichenden Tragfläche zeigte sich, dass der Anteil der Stand- beziehungsweise Grundfläche der Distanzelemente auf einer Plattenfläche, welche einen Reaktions- oder Wärmetransportraum bildet, bezogen auf die gesamte Plattenfläche idealerweise im Bereich
- 15 von 5-15% liegt, wobei der Anteil über 2,5% liegen und 30% nicht überschreiten sollte. Als Bezugsflächen sind in diesem Fall nur diejenigen Flächen der Platten zu verstehen, welche innerhalb der umlaufenden und die Reaktionsräume oder Wärmetransporträume abschließenden Dichtungen sowie Dichtschweiß- oder Dichtlötflächen liegen. Das außerhalb der Dichtungen angeordnete Plattenmaterial ist weitestgehend
- 20 als Vollmaterial ausgebildet und ist für die vorgenannte Betrachtung der Tragflächen ohne Bedeutung. Bei einer hohen Druckdifferenz zwischen Prozessräumen und den Wärmetransporträumen ermöglichen die Kopfflächen der Distanzelemente somit ein hinreichendes Tragverhältnis zur Kraftdurchleitung einer über die beiden Endplatten oder endständigen Ankern oder Ankerplatten aufgetragenen Anpressdruck. Sind die
- 25 Distanzelemente als Stege ausgeführt, so ist die kleinste Stegbreite 1000 μm , Eine Stegbreite über 6000 μm ist in der Regel wirtschaftlich und fertigungstechnisch nicht mehr interessant.

- [0018]** Eine weitere vorteilhafte Ausgestaltung der erfindungsgemäßen Vorrichtung liegt vor, wenn das katalytische Material in eine Vertiefung eingebracht wird, welche
- 30 beispielsweise durch Materialabtrag von der Platte gebildet worden ist. Diese Art der Katalysatorplatzierung auf der Platte ermöglicht einen sehr gleichmäßigen Auftrag, da mechanisch beispielsweise mittels eines Schabers oder Schleifmittels das überstehende Katalysatormaterial auf Höhe der Basisplatte abgetragen werden kann. Die Vertiefungen können eine beliebige Form aufweisen und sind vorteilhafterweise in Nuten-

oder Rillenform gestaltet, wobei eine derartige Nut oder Rille idealerweise immer genau zwischen zwei Stegen in einem Reaktionsspalt verläuft.

[0019] Weiterhin ist mit der Erfindung umfasst, dass mindestens Teile des Platten- oder des Stegwerkstoffes katalytisch wirken. Dies ist vorrangig der Fall, wenn metallische Werkstoffe, wie beispielsweise Edelmetalle, Mangan, Molybdän, Eisen, Chrom, Nickel und andere eingesetzt werden. Abhängig vom energetischen Verlauf der jeweils ablaufenden katalytischen Reaktion, können die Hauptströmungsrichtungen der benachbarten Reaktions- und Wärmetransporträume dergestalt angeordnet sind, dass die Durchströmung bezogen auf den nächstliegenden Raum im Gleich-, Gegenstrom oder mäanderförmig erfolgt. Es ist vor allem möglich, quasi isotherme Reaktionsbedingungen herzustellen, da parallel zu jedem Reaktionsraum in direkter Wirkverbindung auch der Wärmetransport erfolgt. Liegt ein metallisches Basismaterial vor, und sind entsprechend den oben genannten Angaben die Schlitz- und Plattengeometrien optimiert, wird der Wärmetransport vor allem von der Schichtdicke des Katalysatormaterial als limitiert.

[0020] In einer weiteren Ausführungsform sind die Stege je zweier Platten zueinander gerichtet und diese Stege bilden zueinander einen Winkel von 0° bis 90°. In einer besonders vorteilhaften Ausgestaltung sind diese Stege parallel und direkt übereinander liegend angeordnet. Bei einer nicht parallelen Anordnung der Stege wird ein starker Misch- und Verwirbelungseffekt erzielt.

[0021] In einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung ist vorgesehen, dass im Eingang und innerhalb der Reaktionsräume mindestens ein Bereich vorgesehen ist, in welchem mindestens zwei Fluide gemischt werden, wobei mindestens ein gasförmiges oder flüssiges Fluid eingedüst wird an welche sich eine Homogenisierungsstrecke anschließen kann. Erfindungsgemäß ist weiterhin umfasst, dass vor oder entlang dieser Homogenisierungsstrecke eine Vorrichtung beliebiger Bauform angeordnet ist, welche die zur Hauptströmungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert. Diese Verringerung der Querschnittsfläche erzeugt eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeiten und somit eine starke Vermischung der Fluide. Die Bereiche mit vermindertem freien Strömungsquerschnitt stellen bei entsprechender Konstruktion eine mechanische Flamm Sperre dar. Diese Flamm Sperre oder Quench-Effekt verhindert somit den Übertritt von Zündvorgängen aus der Reaktionszone, welche vorrangig im Bereich der Reaktionsschlitz mit Katalysatorbeschich-

tung lokalisiert ist, hin zu anderen Prozesseinheiten, als auch den Flammeintritt in die Reaktionszone, ausgehend von der Verteiler- oder Sammeleinheit.

[0022] In einer weiteren erfindungsgemäßen Vorrichtung sind Bohrungen in der Raumwand angeordnet, welche bezogen auf die Senkrechte zur Hauptströmungsrichtung im Winkel von -60° bis $+60^\circ$ und vorzugsweise im Winkel von -30° bis $+30^\circ$ geneigt und über mindestens einen im Wesentlichen quer zu der Hauptströmungsrichtung liegenden gemeinsamen Kanal verbunden sind. Über diesen Hauptkanal und die Bohrungen erfolgt die Eindüsung eines Fluids in den Reaktionsraum beziehungsweise in die jeweiligen Reaktionsschlitzte. Von der Erfindung ist weiterhin umfasst, dass in Strömungsrichtung am Ende der Reaktionsräume mindestens eine Vorrichtung vorgesehen ist, die die zur Hauptströmungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert, wobei die Vorrichtung eine beliebige Form aufweist und vorteilhafterweise als eine Vielzahl der Distanzelemente, als Erweiterungen der Stegbreiten oder als Blenden und idealerweise als Verringerung der Spalthöhe ausgeführt ist. Diese Querschnittsverringerng am Ende der Reaktionsräume dient der Vergleichmäßigung der Strömung und stellt analog der vorgenannten Gestaltung des Eingangsbereichs bei geeigneter Mikrostrukturierung eine mechanische Flamm Sperre dar und verhindert somit eine vom Katalysator ausgehende Zündung in die angrenzenden und in der Regel makrostrukturierten Reaktor- oder Prozesseinheiten hinein. Überraschenderweise stellte sich heraus, dass unter dem Erfordernis eines weitergehenden Explosions schutzes im Bereich der Stauzone kein Katalysatormaterial mehr angeordnet sein darf, da eine vom Katalysator ausgehende Zündung sonst auch bei bestehender mechanischer Flammhemmung in die Sammeleinheit durch schlagen kann.

[0023] Die Vergleichmäßigung der Strömung ist sehr vorteilhaft, da beispielsweise Unebenheiten in der Katalysatorschicht unterschiedliche Druckdifferenzen entweder in Bereichen der Reaktionsräume oder einzelnen Schlitzten erzeugen, so dass es zu einer ungleichmäßig Durchströmung kommen würden, was zu entsprechenden Nachteilen in der Produktqualität führt, wie es aus dem Stand der Technik bekannt ist. Es zeigte sich, dass der Druckverlust durch die Querschnittsverengung am Auslauf der Platten mindestens um den Faktor 5 größer sein muss als die Schwankung der Druckdifferenz, welche sich aus den Fertigungstoleranzen der Katalysatorschicht ergeben. Idealerweise sollte der Druckverlust über die Stauzone um den Faktor 10 höher sein, als der vorgenannte schwankungsbedingte Druckverlust. Durch die Wahl der vorgenannten Kanalbreite, welche deutlich nicht im Mikrobereich liegt, kann dieses Element konstruktiv sinnvoll und fertigungstechnisch leicht in jedem einzelnen Kanal angeordnet werden.

[0024] Erfindungsgemäß werden weiterhin Verfahren zum Einsatz des vorgenannten Reaktors offenbart, welche bei Differenzdrücken im Bereich von 0 bar bis 15 bar durchgeführt werden, wobei der ideale Einsatzbereich abhängig von dem gewählten Basismaterial zwischen 0 bar und 5 bar liegt. Die möglichen Prozesstemperaturen reichen von Tieftemperaturen unter 0 °C bis Temperaturen von circa 500 °C. Zum Wärmetransport in den in den Wärmetransporträumen können flüssige oder gasförmige Medien hindurchgeleitet werden.

[0025] Eine besondere Ausgestaltung der Erfindung sieht vor, das die Medien in den Wärmetransporträumen während der Durchleitung durch Kondensation oder Verdampfung vollständig oder teilweise den Aggregatzustand ändern.

[0026] Damit sind von der Erfindung Verfahren umfasst, wie beispielsweise die Synthese von Propylenoxyd aus im Wesentlichen Propen und Wasserstoffperoxid oder Phenol aus im Wesentlichen aromatischen Kohlenwasserstoffen sowie weitere Synthese von Kohlenwasserstoffverbindungen und besonders von Oxygenaten von Kohlenwasserstoffverbindungen. Weiterhin ist der Reaktor geeignet für die Synthese von Wasserstoffperoxid aus Wasserstoff und Sauerstoff.

[0027] Die Erfindung wird nachstehend anhand von Ausführungsbeispiele darstellenden Zeichnungen erläutert. Es zeigen

Fig. 1 eine einzelne Reaktorplatte in der Draufsicht und die Lage der Detailansicht Fig. 5 im Eingangsbereich der Platte sowie die Lage der Detailansicht Fig. 7 am Ausgang der Platte sowie die Dichtungs- und Leitstegeanordnung;

Fig. 2 analog der Fig. 1 eine einzelne Reaktorplatte in der Draufsicht, welche keine integrierte Verteilereinheit aufweist, sondern auf der schmalen Plattenseite auf der gesamten Breite angeströmt wird; ;

Fig. 3 eine einzelne Wärmetransportplatte in der Draufsicht sowie eine Variante der Dichtungsanordnung und der Leitstege;

Fig. 4 als Schnittzeichnung beispielhaft eine Stapelfolge von Reaktor- und Wärmetransporträumen;

Fig. 5 in einer Detailansicht den Eingangsbereich der Schlitze sowie die Vorrichtung zur Eindüsung von Fluiden und die Homogenisierungsstrecke in zwei Ausführungsvarianten;

- Fig. 6 die Lage der verwendeten Abmessungen
- Fig. 7 in einer Detailansicht das Ende der Reaktionsschlitzte beziehungsweise die Gestaltung der Distanzelemente sowie die Lage und Gestaltung der Stauvorrichtung in zwei Ausführungsvarianten;
- 5 Fig. 8 mögliche Anordnungen in einem Reaktionsraum.

[0028] Fig. 1 ist eine einen Reaktionsraum bildende Reaktorplatte zu entnehmen, auf welcher ein ankommendes Edukt über die zentrale Zuleitung 2 in die Verteilereinheit 6 des Reaktionsraumes 8 führbar ist. In der Verteilereinheit sind Leitstege 9 angeordnet, welche dieses Edukt gleichmäßig auf die mit Katalysatormaterial beschichteten Schlitzte verteilt, welche sich zwischen den Distanzelementen 11, hier als Stege gezeigt, ausbilden. Die Schlitzte sind parallel angeordnet und geben die Hauptströmungsrichtung 14 vor. Am Ende der Schlitzte in der Sammeleinheit 7 gezeigt, in welcher ein Produktstrom gefasst wird und dort mittels weiterer Leitstege 9 der zentralen Ableitung 4 zugeleitet wird. In Fig. 1 ist weiterhin die zentrale Zuleitung 24 für einen zweiten Eduktstrom gezeigt, welche quer zur Hauptströmungsrichtung 14 in der Basisplatte 1 liegende Kanäle 24a speist, welchen mit den in Fig. 5 gezeigten Bohrungen 25 verbunden sind. Über diese Bohrungen erfolgt die Eindüsung dieses zweiten Eduktstromes in den Reaktionsraum. Über irreversible Verbindungen und/oder Dichtungen 26 sind Reaktionsräume 8, Wärmetransporträume 10 sowie deren Zu- und Abläufe abgedichtet. In ähnlicher Weise ist die in Fig. 3 gezeigte Platte eines Wärmetransportraumes aufgebaut, wobei die Stege 11 in der gezeigten Ausführungsform mit den Stegen des Reaktionsraumes parallel und deckungsgleich verlaufen. Die Katalysatorbeschichtung und die Zuführungsleitung für weitere Fluide ist hierbei nicht vorge-

10

15

20

25 [0029] In Fig. 2 ist eine Reaktorplatte gezeigt, welche keinen integrierten Verteilerraum im Reaktionsraum aufweist, sondern durch einen zentralen Eduktstrom gemeinsam mit den anderen hier nicht dargestellten Reaktorplatten angeströmt wird.

[0030] Fig. 4 zeigt als Schnittzeichnung beispielhaft eine Stapelfolge von Reaktor- und Wärmetransporträumen, wobei die Hauptströmungsrichtung senkrecht aus der Zeichenebene heraus oder in diese hinein führt. In dem Reaktionsraum a) sind einseitig mit Katalysatormaterial 12 beschichtete Schlitzte zu erkennen, wobei der nachfolgende Wärmetransportraum gleichartig gestaltet ist. Der maximal mögliche Strömungsquerschnitt der Reaktionsschlitzte ist gegenüber den Schlitzten des angrenzenden Wärme-

30

transportraumes um die Querschnittsfläche der Katalysatorschicht vermindert. Im Reaktionsraum b) sind Schlitzze zu erkennen, welche an beiden Plattenoberflächen mit Katalysator versehen sind. Es folgen Wärmetransporträume, welche eine unterschiedliche Anzahl an Schlitzzen enthalten. Auch in dem Reaktionsraum c) sind beide Plattenwände mit Katalysator beschichtet, wobei eine Plattenoberfläche mit Nuten versehen ist, in welchen das Katalysatormaterial 12 (s. auch Fig. 6 c)) eingebracht ist. Daher vermindert sich der maximal mögliche Strömungsquerschnitt nur um die Querschnittsfläche einer Katalysatorschicht.

[0031] Fig. 5 zeigt in drei Varianten den Einströmungsbereich einzelner Reaktionsschlitzze, wobei der Eduktstrom von der Verteilereinheit kommend in die Mischzone 30 einströmt, wo über den Zulauf 24a und die Bohrungen 25 ein zweites und drittes Fluid dem Eduktstrom zugemischt wird. Die Bohrungen 25 stehen wie in a) gezeigt rechtwinklig oder sind im Winkel γ (Fig. 5 b)) mit oder gegen die Hauptströmungsrichtung geneigt. Vor dem Eintritt in die Reaktionszone, welche sich durch die Wandbeschichtung mit Katalysatormaterial auszeichnet, ist eine Homogenisierungszone 31 angeordnet, in welcher durch Einbauten 29 eine Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit turbulente Verhältnisse geschaffen und optimale Vermischungen erreicht werden. In Fig. 5 b) sind zwei Ausführungsvarianten möglicher Einbauten gezeigt. Die Einbauten 29 b) verringern bereits in Bereich der Mischzone 30 den freien Strömungsquerschnitt, so dass Mikrostrukturen entstehen und bilden damit eine weitergehende mechanische Flamm Sperre als dies mit den Einbauten 29 a) gegeben ist.

[0032] Fig. 6 zeigt die Lage der verwendeten Abmessungen und die in dieser Schrift verwendeten Längenangaben. Es ist zu erkennen, dass der freie Strömungsquerschnitt eines Schlitzes sich aus der Spaltbreite 16 mal Steghöhe 17 minus der Querschnittfläche des aufgetragenen Katalysatormaterials 12 ergibt, wobei die Katalysatorquerschnittsfläche üblicherweise das Produkt aus Schichtdicke und Spaltbreite 16 darstellt. Ausnahmen stellen beispielsweise die in Fig. 6 c) gezeigten Varianten dar, in welchen die Stegflanken ebenfalls mit Katalysatormaterial beschichtet sind oder das Katalysatormaterial in einer Nut oder Rille eingebracht ist (s. Fig. 6 c)). Die für die Festigkeitsüberlegungen maßgebliche Größe ist die effektive Plattenhöhe 22, welche im Bereich der geringsten Plattendicke vorliegt und im Beispiel c) im Bereich der Nut liegt. In den Beispielen a) und b) der Fig. 6 ist es die Plattenhöhe 21.

[0033] Fig. 7 zeigt in einer Detailansicht die Auslaufzone der Reaktionsschlitzze in drei Gestaltungsvarianten sowie Ausführungsformen der Distanzelemente. Es sind in dem

Ausführungsbeispiel a) in Fig. 7 Vergrößerungen der Stegbreiten 18 gezeigt, welche Stauzonen 32 darstellen. In dem Ausführungsbeispiel b) dieser Figur werden die Schlitz-
5 e durch eine Art Säulengang gebildet, indem rotationssymmetrische Distanzelemente gassenweise angeordnet sind und in den Gassen Katalysatormaterial, dargestellt als punktierte Fläche, aufgetragen ist. In dieser Variante wird der Stau-
effekt über ovale Distanzelemente bzw. Blenden 29 erreicht, welche in der Hauptströmung
der Schlitz- e angeordnet sind. Wie in der Teilansicht c) zu erkennen, sind die Distanzelemente in beliebiger Verteilung im Raum angeordnet, wobei die Stauzone 32 durch
10 eine enger stehende Anordnung von Distanzelementen gebildet wird. Das Katalysatormaterial ist in diesem Beispiel auf der kompletten Plattenoberfläche aufgebracht und erstreckt sich auch auf den Bereich hinter der Staustufe.

[0034] Zwei Ausführungsvarianten der Steganordnung innerhalb eines Reaktionsraumes zeigt Fig. 8. In beiden Beispielen sind die Stege der Platten zueinander gerichtet,
wobei in a) die Stege zueinander rechtwinklig angeordnet sind. In der Ausführungs-
15 variante b) liegt ein beliebiger Winkel α zwischen den Stegen vor. In beiden Fällen wird auf der Strecke zwischen Verteilereinheit 6 und Sammeleinheit 7 eine hohe Quervermischung erzielt.

[0035] BEZUGSZEICHENLISTE

- 1 Platte, Basisplatte
- 2 Zuleitung FLuid 1
- 3 Zulauf Wärmetransportmedium
- 5 4 Ableitung Produktstrom
- 5 Ablauf Wärmetransportmedium
- 6 Verteilereinheit
- 7 Sammeleinheit
- 8 Reaktionsraum
- 10 9 Leitstege
- 10 Wärmetransportraum / Wärmetransportmedium
- 11 Distanzelement
- 12 Katalysatormaterial
- 13 Freier Strömungsquerschnitt
- 15 14 Hauptströmungsrichtung
- 15 Schlitzhöhe
- 16 Schlitzbreite
- 17 Steghöhe
- 18 Stegbreite
- 20 19 Stegabstand
- 20 Katalysatorhöhe
- 21 Plattenhöhe
- 22 Effektive Plattenhöhe
- 23 Rillen-/Nutbreite
- 25 24 Zulauf Fluid 2 / Fluid 3
- 25 Bohrungen
- 26 Dichtung
- 27 Distanzelement Zylinder
- 28 Leitstege
- 30 29 Blende, Einbauten
- 30 Mischzone
- 31 Homogenisierzone
- 32 Stauzone

Patentansprüche

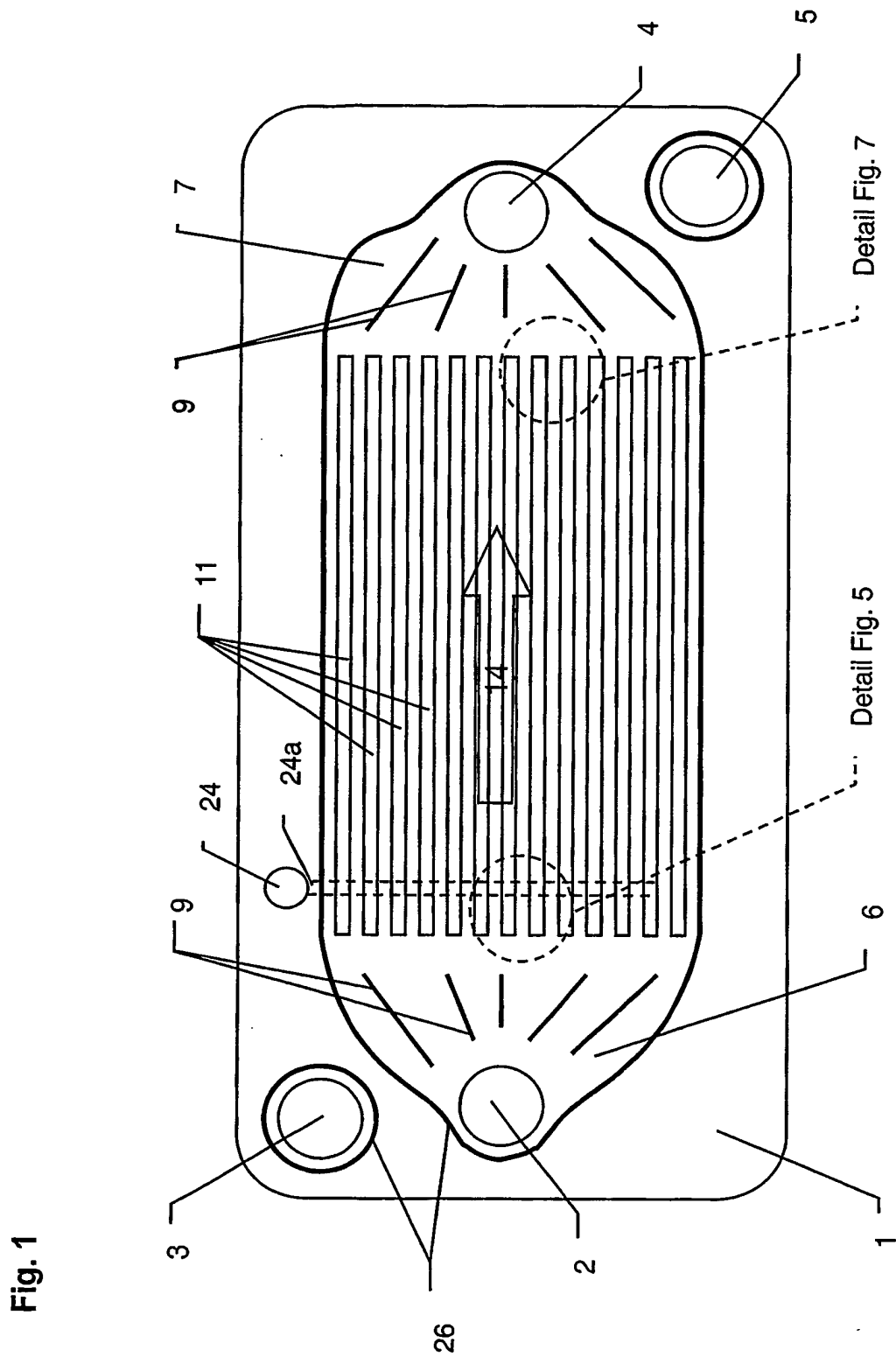
- 1 Mikroreaktor zur Durchführung heterogenkatalysierter Reaktionen, welcher eine
Vielzahl von vertikal oder horizontal und im Wesentlichen parallel angeordneter
Räume aufweist, welche mindestens je eine Zuleitung und eine Ableitung aufwei-
5 sen, wobei die Zuleitungen mit mindestens einer Verteilereinheit und die Ableitun-
gen mit mindestens einer Sammeleinheit verbunden sind, wobei die Räume durch
gestapelte Platten oder Schichten gebildet werden, und ein Teil der Räume Reak-
tionsräume darstellt, und der andere Teil der Räume Wärmetransporträume dar-
stellt, wobei der Wärmetransport zwischen Reaktions- und Wärmetransporträumen
10 durch mindestens eine gemeinsame Raumwand erfolgt, welche durch eine ge-
meinsame Platte gebildet wird, wobei in allen Räumen Distanzelemente angeord-
net sind, **dadurch gekennzeichnet, dass** an den Innenwänden der Reaktorräume
mindestens teilweise Katalysatormaterial aufgebracht ist, wobei der hydraulische
Durchmesser, welcher definiert ist als der Quotient aus der vierfachen Fläche zur
15 Umfangslänge des freien Strömungsquerschnitts, in den Reaktionsräumen kleiner
als $4000\ \mu\text{m}$ ist und vorteilhafterweise unter $1500\ \mu\text{m}$ und idealerweise unter $500\ \mu\text{m}$
liegt, und ein Verhältnis zwischen dem lotrecht kleinsten Abstand zweier be-
nachbarter Distanzelemente zur Schlitzhöhe des Reaktionsraumes nach einer Be-
schichtung mit Katalysator von kleiner 800, vorrangig kleiner 450 und idealerweise
20 unter 100 vorliegt, und größer oder gleich 10 ist.
- 2 Vorrichtung nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Distanzele-
mente rotationssymmetrisch, tropfenförmig, rhombenförmig oder vorteilhafterweise
als Stege und idealerweise als durchgehende Stege gestaltet sind.
- 3 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass**
25 der Anteil der Stand- beziehungsweise Grundfläche der Distanzelemente, bezogen
auf die Plattenfläche, welche innerhalb einer den Reaktions- oder Wärmetransport-
raum abschließenden und umlaufenden Dichtung sowie Dichtschweiß- oder
Dichtlöt Nähten liegt, mindestens 2,5% beträgt, vorzugsweise im Bereich von 5-
15% liegt und 30% nicht überschreitet.
- 30 4 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, dass**
Distanzelemente, welche als Stege oder durchgehende Stege ausgebildet sind ei-
ne Stegbreite größer oder gleich $1000\ \mu\text{m}$ aufweisen und nicht breiter als $6000\ \mu\text{m}$
sind.

- 5 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, dass**
das katalytische Material in einem Schlitz im Wesentlichen auf der Platte aufgebracht ist.
- 5 6 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet, dass**
mindestens Teilflächen der Verteiler- und/oder Sammeleinheit mit katalytischem Material beschichtet sind oder aus katalytisch wirkendem Material gefertigt sind.
- 7 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet, dass**
das Material mindestens einer Teilfläche der Raumwand oder der Distanzelemente katalytisch wirkt.
- 10 8 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet, dass**
Zu- und Ableitungen der Reaktions- und Wärmetransporträume dergestalt angeordnet sind, dass die Durchströmung bezogen auf den nächstliegenden Raum im Gleich-, Gegenstrom oder mäanderförmig erfolgt.
- 15 9 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 8, **dadurch gekennzeichnet, dass**
die Platten Vertiefungen in den Reaktionsräumen aufweisen, in denen zumindest teilweise das Katalysatormaterial eingebracht ist, wobei die Vertiefungen eine beliebige Form aufweisen können und vorteilhafterweise in Rillenform gestaltet sind und idealerweise immer genau in einem Spalt verlaufen.
- 20 10 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, **dadurch gekennzeichnet, dass**
die Stege je zweier Platten zueinander gerichtet sind und diese Stege zueinander den Winkel von 0° bis 90° bilden und idealerweise diese Stege parallel und direkt übereinander liegend angeordnet sind.
- 25 11 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 10, **dadurch gekennzeichnet, dass**
in Hauptströmungsrichtung am Eingang und innerhalb der Reaktionsräume mindestens eine Vorrichtung vorgesehen ist, die die zur Hauptströmungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert, wobei die Vorrichtung eine beliebige Form aufweist.
- 30 12 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 11, **dadurch gekennzeichnet, dass**
am Eingang und innerhalb der Reaktionsräume mindestens ein Bereich vorgesehen ist, in welchem mindestens zwei Fluide gemischt werden, wobei mindestens ein Fluid im Wesentlichen senkrecht zur Hauptströmungsrichtung eingedüst wird und nach der Eindüsung eine Homogenisierungsstrecke angeordnet ist.
- 35 13 Vorrichtung nach Anspruch 12, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Eindüsung eines Fluids über Bohrungen in der Raumwand geschieht, welche bezogen auf die Senkrechte zur Hauptströmung im Winkel von -60° bis +60° und idealerweise im

Winkel von -30° bis $+30^{\circ}$ geneigt und durch mindestens einen im Wesentlichen quer zu der Hauptströmungsrichtung liegenden Fluidkanal verbunden sind.

- 14 Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** in Strömungsrichtung am Ende der Reaktionsräume mindestens eine Vorrichtung vorgesehen ist, die die zur Hauptströmungsrichtung senkrecht stehende freie Querschnittfläche verringert, wobei die Vorrichtung eine beliebige Form aufweist und vorteilhafterweise als eine Vielzahl der Distanzelemente, als Erweiterungen der Stegbreiten oder als Blenden und idealerweise als Verringerung der Spalthöhe ausgeführt ist.
- 15 Vorrichtung nach Anspruch 14, **dadurch gekennzeichnet, dass** der Druckverlust durch die Querschnittsverengung am Auslauf der Platten mindestens um den Faktor 5 größer ist, als die Schwankung der Druckdifferenz, welche sich aus den Fertigungstoleranzen der Katalysatorschicht und/oder des Spaltes ergeben.
- 16 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 15, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Verfahren bei Differenzdrücken zwischen den Reaktions- und Wärmetransporträumen im Bereich von 0 bar bis 15 bar und idealerweise zwischen 0 bar und 5 bar liegen.
- 17 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 16, **dadurch gekennzeichnet, dass** in den Wärmetransporträumen flüssige oder gasförmige Medien hindurchgeleitet werden.
- 18 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 17, **dadurch gekennzeichnet, dass** in die Medien in den Wärmetransporträumen während der Durchleitung vollständig oder teilweise den Aggregatzustand ändern.
- 19 Verfahren zum Einsatz der Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 18, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Verfahren bei Temperaturen unter $500^{\circ}\text{Celsius}$ und auch bei Temperaturen unter 0°Celsius eingesetzt wird.
- 20 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, **dadurch gekennzeichnet, dass** dieses zur Synthese von Kohlenwasserstoffverbindungen und besonders von Oxygenaten von Kohlenwasserstoffverbindungen eingesetzt wird.
- 21 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, **dadurch gekennzeichnet, dass** dieses zur Synthese von Propylenoxid aus im Wesentlichen Wasserstoffperoxid und Propen eingesetzt wird.
- 22 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, **dadurch gekennzeichnet, dass** dieses zur Synthese von Phenol eingesetzt wird.

- 23 Verfahren nach einem der Ansprüche 16 bis 19, **dadurch gekennzeichnet, dass** dieses zur Synthese von Wasserstoffperoxid aus im Wesentlichen Wasserstoff und Sauerstoff eingesetzt wird.



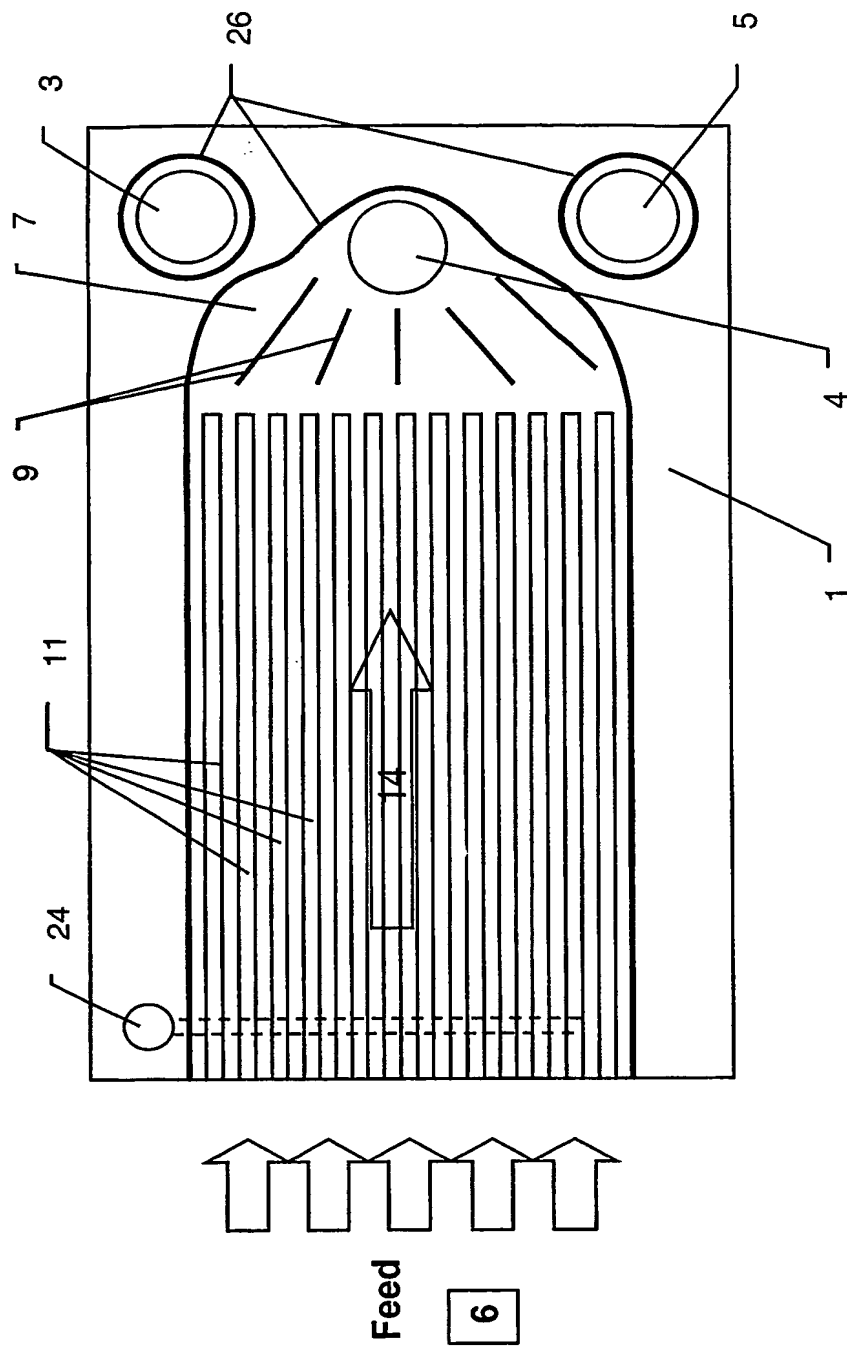
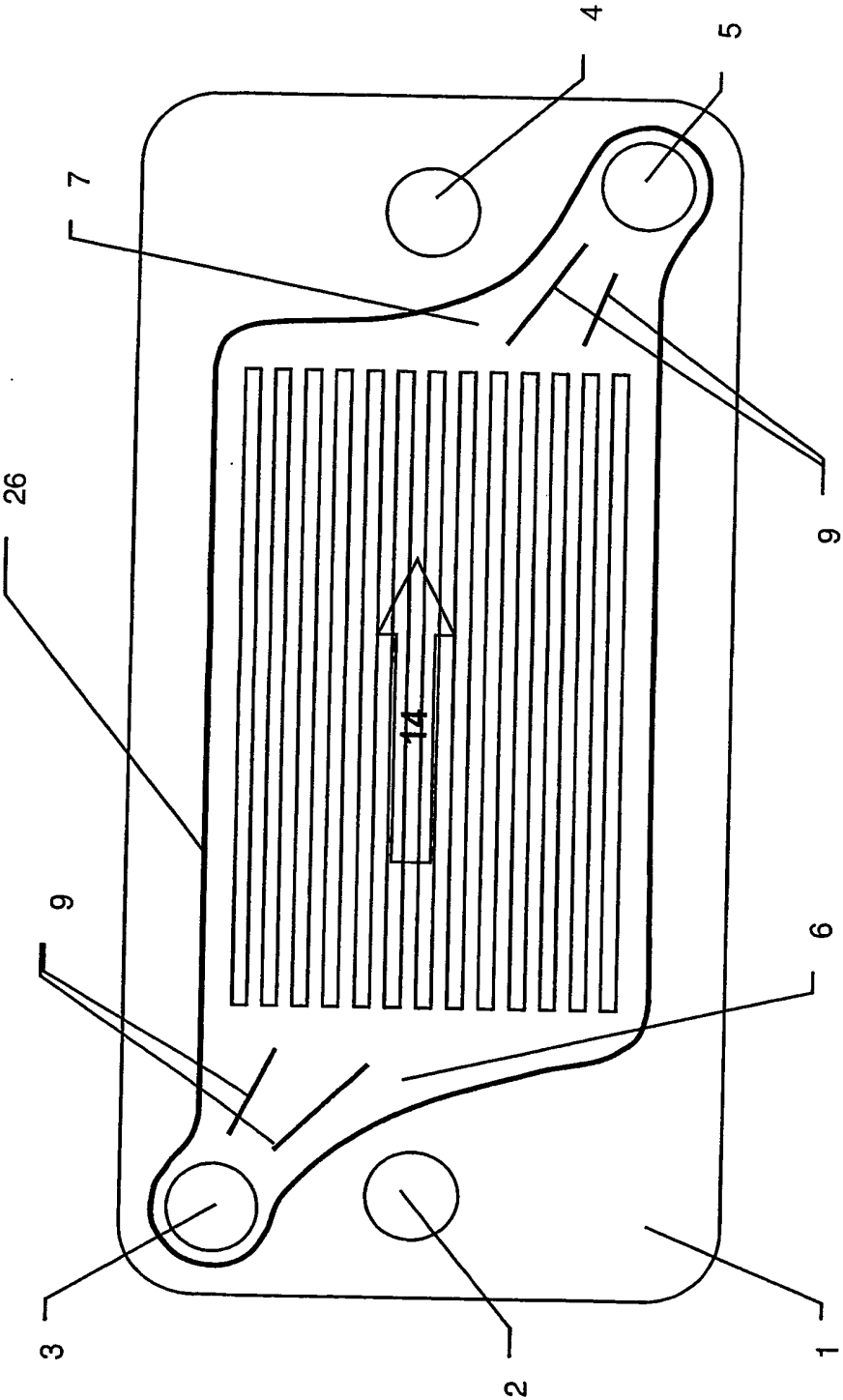


Fig. 2

Fig. 3



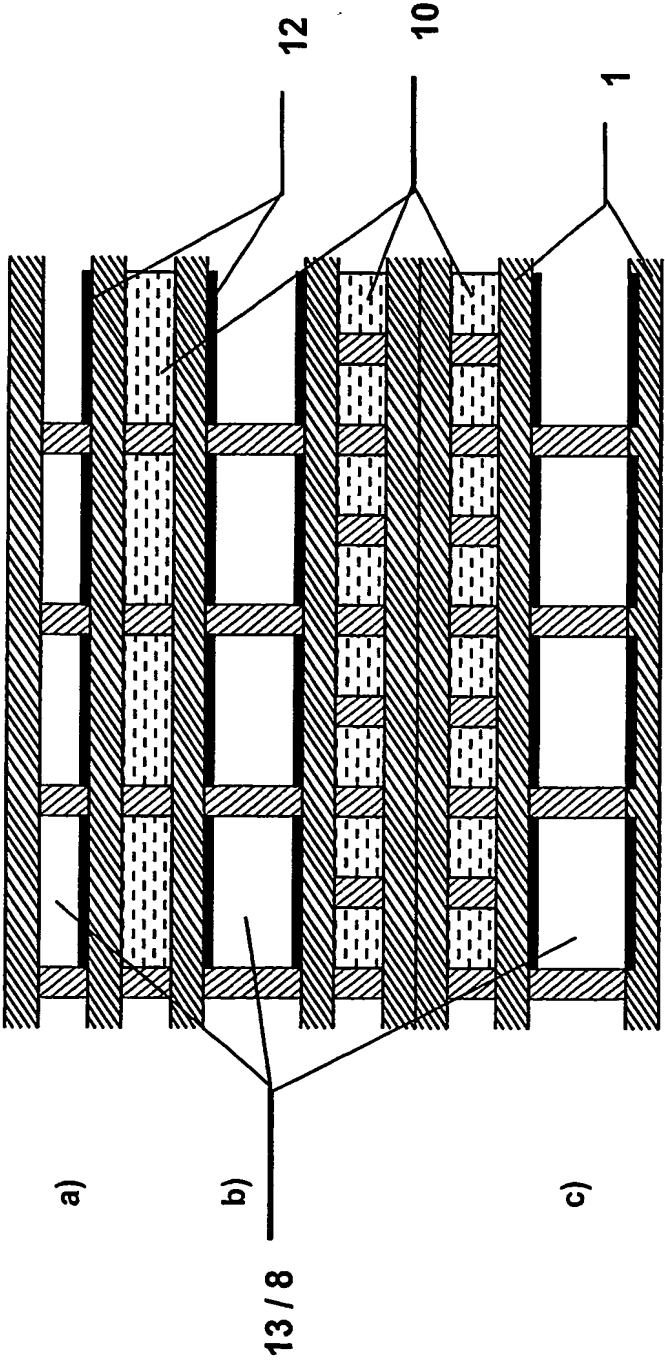


Fig. 4

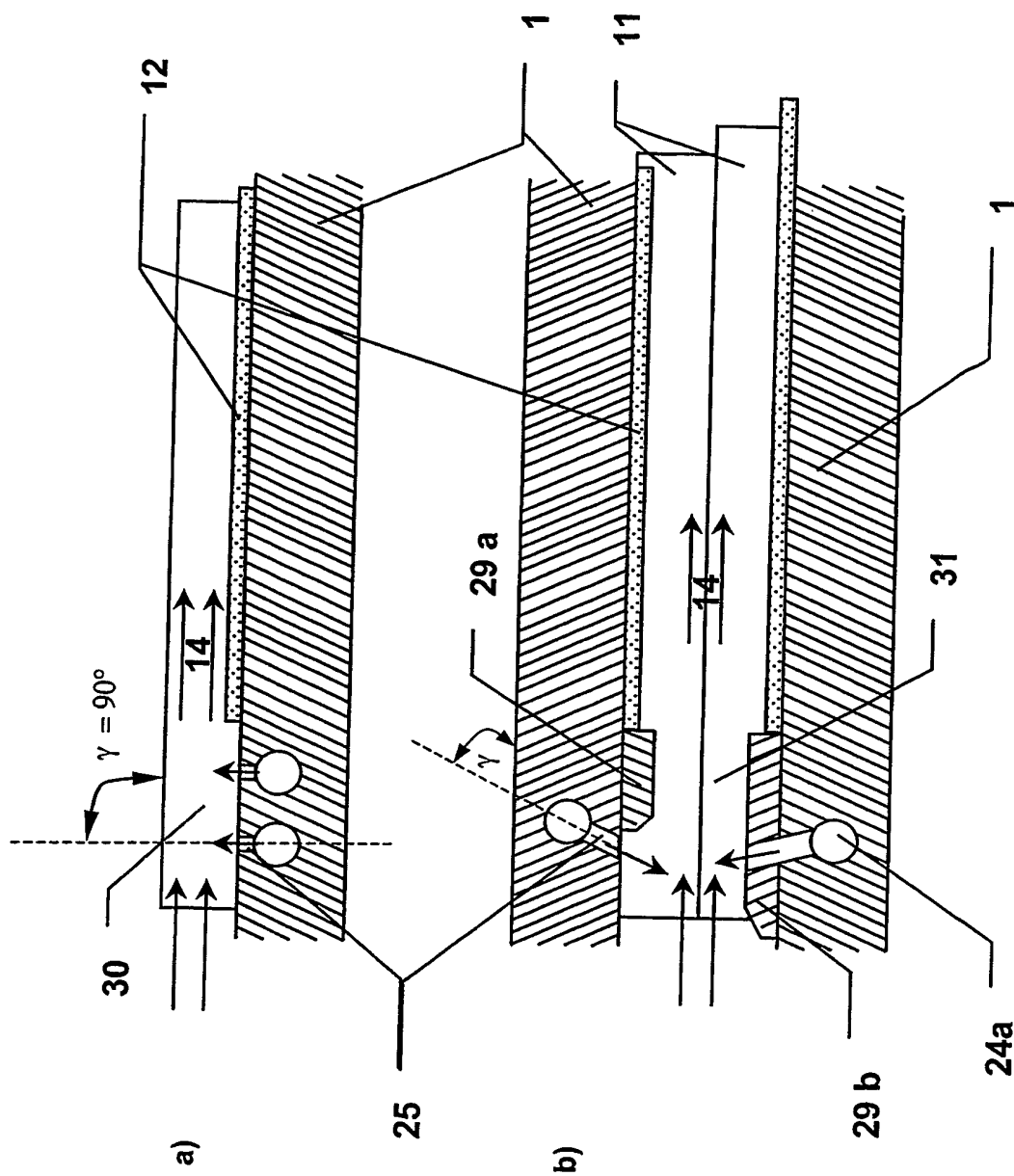


Fig. 5

Fig. 6

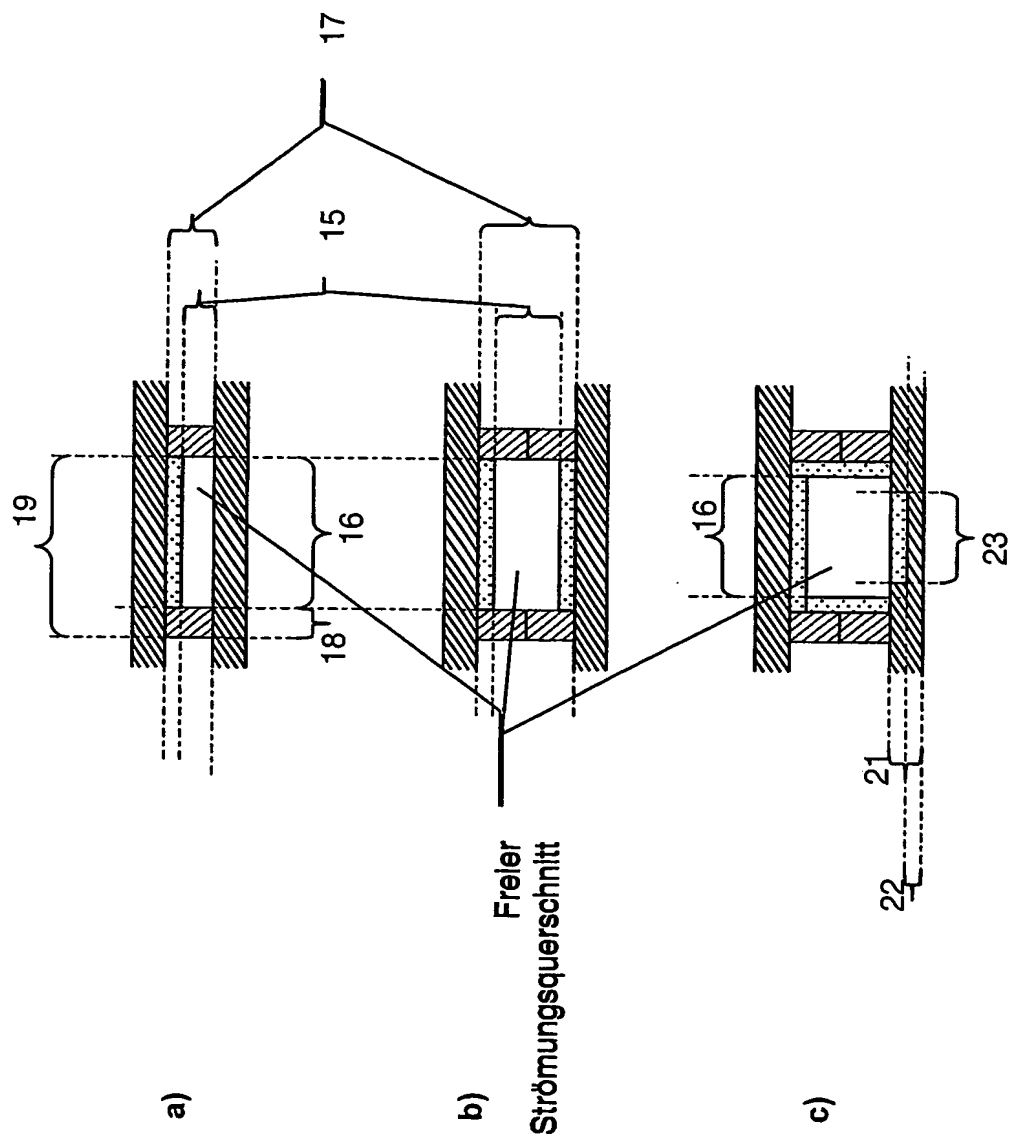


Fig. 7

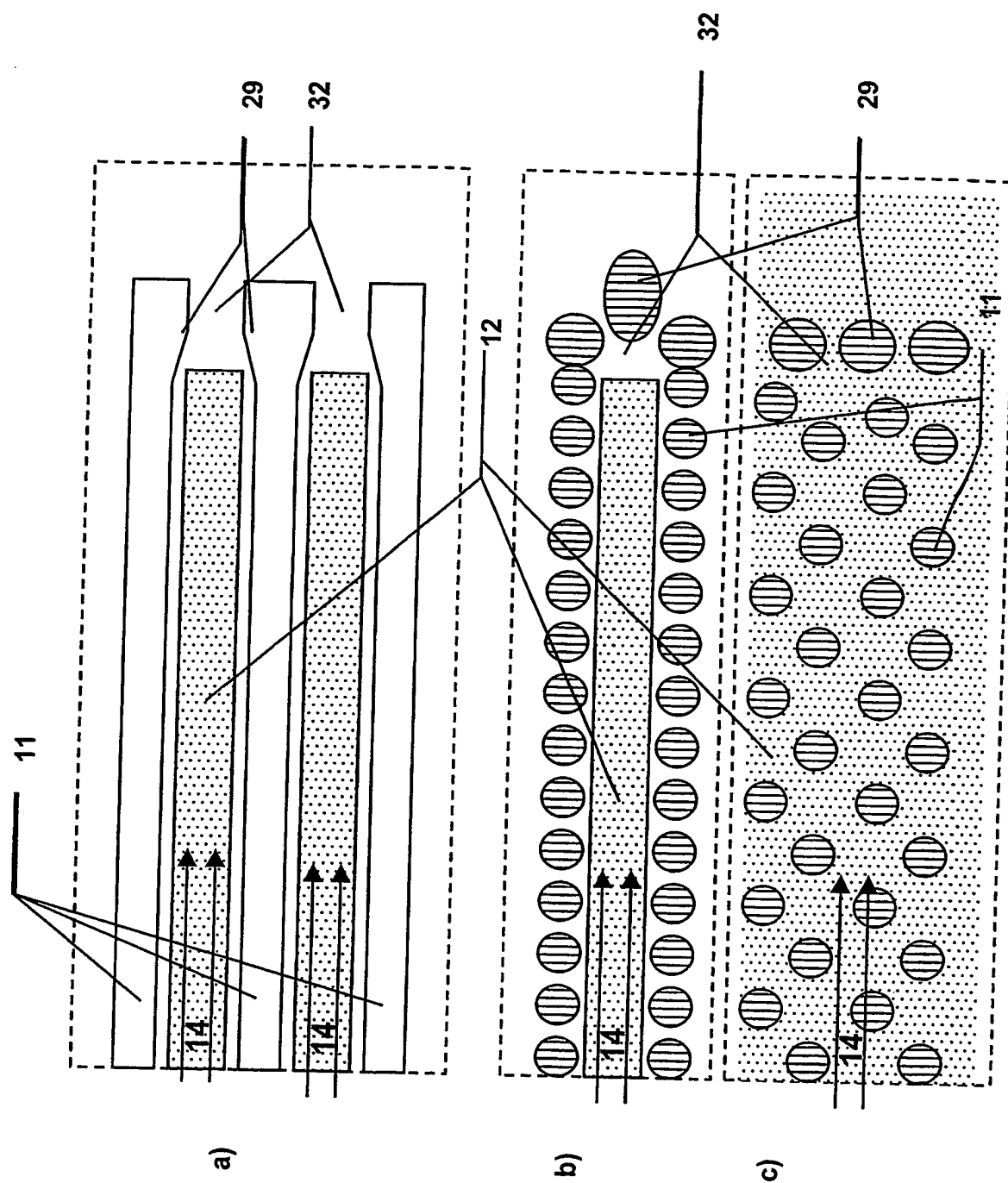
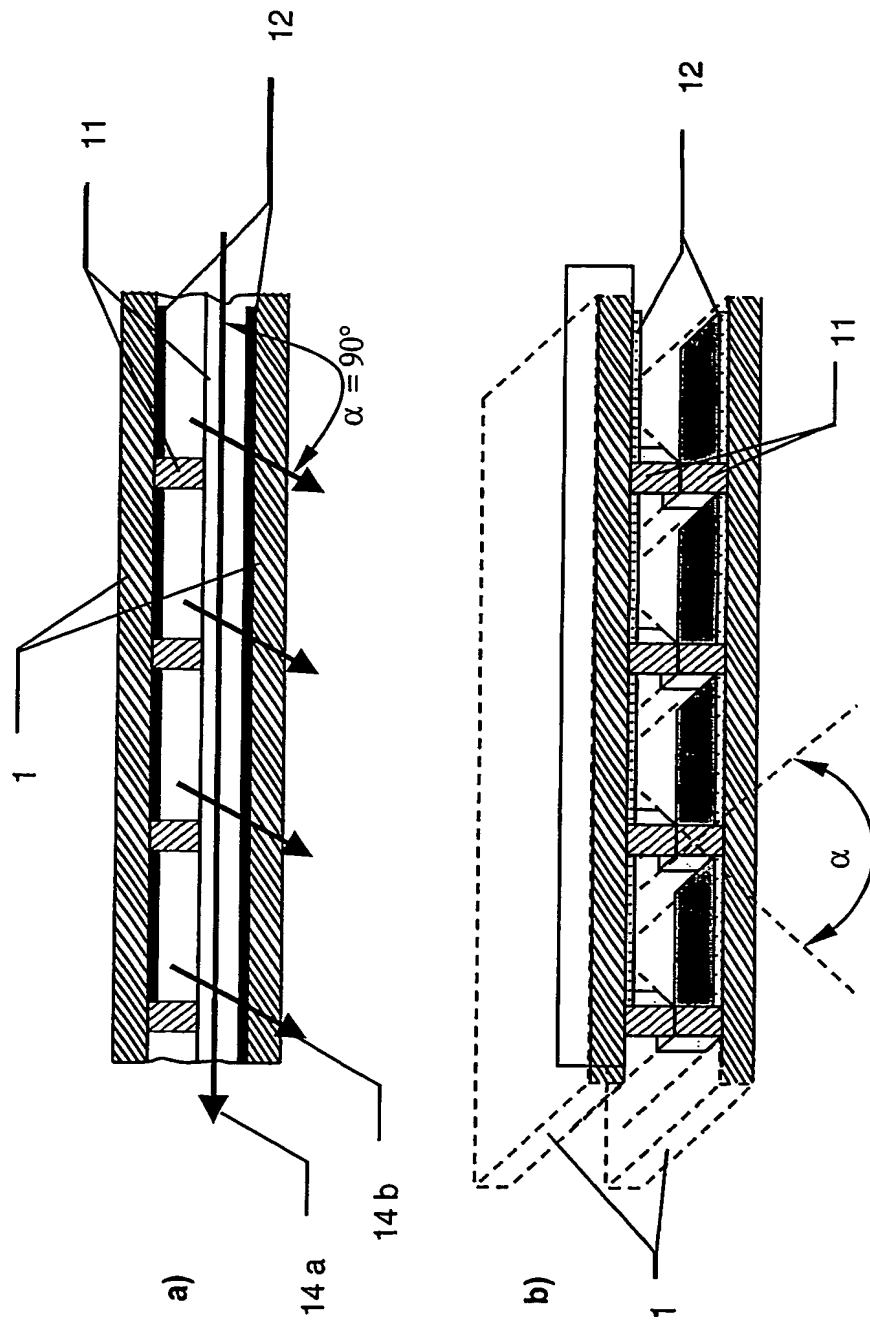


Fig. 8



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2004/003377

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01J19/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 98/37457 A (BREUER NORBERT ; MEYER HEINRICH (DE); ATOTECH DEUTSCHLAND GMBH (DE)) 27 August 1998 (1998-08-27) abstract page 9, line 9 - line 13 page 10, line 19 - line 34 page 25, line 5 - line 13; figure 5	1-23
A	EP 0 903 174 A (BAYER AG ; KARLSRUHE FORSCHZENT (DE)) 24 March 1999 (1999-03-24) abstract page 3, paragraph 11 - paragraph 14 page 4, paragraphs 21,29; figure 1 page 5, paragraph 33; figure 3 ----- -/-	1-23

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

15 July 2004

Date of mailing of the international search report

26/07/2004

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Thomasson, P

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP2004/003377

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>JANICKE M T ET AL: "The Controlled Oxidation of Hydrogen from an Explosive Mixture of Gases Using a Microstructured Reactor/Heat Exchanger and Pt/Al₂O₃ Catalyst"</p> <p>JOURNAL OF CATALYSIS, ACADEMIC PRESS, DULUTH, MN, US, vol. 191, no. 2, 25 April 2000 (2000-04-25), pages 282-293, XP004465467 ISSN: 0021-9517 abstract</p> <p>-----</p>	1-23

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/003377

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9837457	A	27-08-1998	DE 19708472 A1	24-09-1998
			CA 2282354 A1	27-08-1998
			WO 9837457 A1	27-08-1998
			DE 59809806 D1	06-11-2003
			EP 0961953 A1	08-12-1999
			ES 2205468 T3	01-05-2004
			JP 2001524019 T	27-11-2001
			TW 438624 B	07-06-2001
			US 6409072 B1	25-06-2002
EP 0903174	A	24-03-1999	DE 19741645 A1	25-03-1999
			CA 2247662 A1	22-03-1999
			EP 0903174 A1	24-03-1999
			JP 11171857 A	29-06-1999

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/003377

A. KLASSTIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 B01J19/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 98/37457 A (BREUER NORBERT ; MEYER HEINRICH (DE); ATOTECH DEUTSCHLAND GMBH (DE)) 27. August 1998 (1998-08-27) Zusammenfassung Seite 9, Zeile 9 - Zeile 13 Seite 10, Zeile 19 - Zeile 34 Seite 25, Zeile 5 - Zeile 13; Abbildung 5	1-23
A	EP 0 903 174 A (BAYER AG ; KARLSRUHE FORSCHZENT (DE)) 24. März 1999 (1999-03-24) Zusammenfassung Seite 3, Absatz 11 - Absatz 14 Seite 4, Absätze 21,29; Abbildung 1 Seite 5, Absatz 33; Abbildung 3 ----- -/--	1-23



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

15. Juli 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

26/07/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Thomasson, P

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/003377

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>JANICKE M T ET AL: "The Controlled Oxidation of Hydrogen from an Explosive Mixture of Gases Using a Microstructured Reactor/Heat Exchanger and Pt/Al₂O₃ Catalyst"</p> <p>JOURNAL OF CATALYSIS, ACADEMIC PRESS, DULUTH, MN, US, Bd. 191, Nr. 2, 25. April 2000 (2000-04-25), Seiten 282-293, XP004465467 ISSN: 0021-9517 Zusammenfassung</p> <p>-----</p>	1-23

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/003377

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
WO 9837457	A	27-08-1998	DE	19708472 A1	24-09-1998
			CA	2282354 A1	27-08-1998
			WO	9837457 A1	27-08-1998
			DE	59809806 D1	06-11-2003
			EP	0961953 A1	08-12-1999
			ES	2205468 T3	01-05-2004
			JP	2001524019 T	27-11-2001
			TW	438624 B	07-06-2001
			US	6409072 B1	25-06-2002
EP 0903174	A	24-03-1999	DE	19741645 A1	25-03-1999
			CA	2247662 A1	22-03-1999
			EP	0903174 A1	24-03-1999
			JP	11171857 A	29-06-1999

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER: _____**

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)